

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-058095

(43)Date of publication of application : 25.02.2000

(51)Int.Cl.

H01M 8/04

H01M 8/12

(21)Application number : 10-234895

(71)Applicant : KYUSHU ELECTRIC POWER CO
INC
TOTO LTD

(22)Date of filing : 07.08.1998

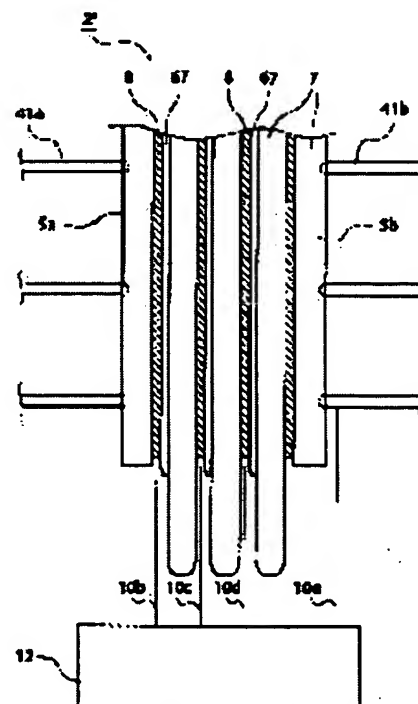
(72)Inventor : NAKAYAMA TAKAHARU
TAJIRI HIROAKI
KUROISHI MASAHIRO
TAKEUCHI HIROAKI
AIZAWA MASANOBU

(54) INSPECTION METHOD FOR SOLID-ELECTROLYTE FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an inspection method for a tubular cell type solid oxide fuel cell (T-SOFC), capable of detecting pin holes in cylindrical cells and superior in reliability.

SOLUTION: In inspection, electric wires 10b to 10e for inspection are attached to positive-negative sides and negative-side current collecting rods 41a, 41b and to interconnectors 8 of respective cells 7. The electric wires 10b to 10e are led to a voltmeter 12. Open-circuit potential of each cell 7 can be detected as the the potential difference between the potential of the interconnector or the current collecting rod and cell the potential of one cell before cell and the potential of its own interconnector.



* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The inspection approach of the solid oxide fuel cell which is the inspection approach of the fuel cell equipped with the air pole by which the laminating was carried out to the shape of a multilayer cylinder, a solid electrolyte layer, a fuel electrode, and the aggregate of two or more cylindrical cells which have interconnector, and is characterized for; cell by independent or for more than one connecting, operating, measuring the open circuit potential of each cell in that case, and inspecting the airtightness of this cell.

[Claim 2] The inspection approach of the solid oxide fuel cell according to claim 1 which makes the above-mentioned inspection operation the nitrogen-gas-atmosphere method which added hydrogen for a fuel electrode side, and is characterized by performing an air pole side as an ambient atmosphere containing oxygen.

[Translation done.]

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the inspection approach of a cylindrical cel type solid oxide fuel cell (henceforth T-SOFC). In case connection immobilization of the cylindrical cel is carried out especially at a serial and juxtaposition, by carrying out the monitor of the cel potential, the pinhole of a cylindrical cel can be detected and it is related with the inspection approach that T-SOFC excellent in dependability can be offered.

[0002]

[Description of the Prior Art] T-SOFC is one type of the solid oxide fuel cell currently indicated by JP, 1-59705, B etc. T-SOFC has the cylindrical cel which consists of porosity hanger-tube-air pole-solid electrolyte layer-fuel electrode-interconnectors. If oxygen (air) is poured to an air pole side and fuel gas (H₂, CO, etc.) is poured to a sink and fuel electrode side, O₂-ion moves within this cel, chemical combustion happens, between an air pole and a fuel electrode, potential will arise and a generation of electrical energy will be performed. In addition, there is also a thing of the format that an air pole makes a hanger tube serve a double purpose.

[0003] By the way, when a pinhole exists in a solid electrolyte layer, it is the inside of a cel Not O₂-ion but O₂ A molecule moves, the usual combustion is produced, the oxygen tension by the side of a fuel is raised, and the potential (open circuit potential) produced between an air pole and a fuel electrode is reduced.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] The conventional method of inspecting the above-mentioned pinhole found [classic] air bubbles, putting in a cel underwater and applying pneumatic pressure in a cel. A small pinhole was not able to be found although the considerable big (0.5 micrometers of for example, diameters) pinhole could be found by this approach. Therefore, since it began to make a test run after including many cels in actual equipment, abnormalities may have been recognized. In this case, a thing with which poor cel in many cels, or since it was unknown, it was hard to take a measure.

[0005] This invention was made in view of such a trouble, can detect the pinhole of a cylindrical cel by carrying out the monitor of the cel potential, in case it is the inspection approach of a cylindrical cel type solid oxide fuel cell (T-SOFC) and connection immobilization of the cylindrical cel is carried out at a serial and juxtaposition, and aims at offering the inspection approach that T-SOFC excellent in dependability can be manufactured.

[0006]

[Means for Solving the Problem] in order to solve the above-mentioned technical problem -- the inspection approach of the fuel cell of this invention the inspection approach of the fuel cell equipped with the air pole by which the laminating was carried out to the shape of a multilayer cylinder, a solid electrolyte layer, a fuel electrode, and the aggregate of two or more cylindrical cels which have interconnector -- it is; independent in a cel -- or -- two or more -- connecting -- operating -- It is characterized by measuring the open circuit

potential of each cel in that case, and inspecting the airtightness of this cel.

[0007] According to this approach, the open-circuit-potential fall by the detailed pinhole can also be discovered certainly. Moreover, if the open circuit potential of each cel is detected, since which cel is immediately known in a problem, it will be easy to take a measure, without connecting each cel to juxtaposition, also when operating two or more cels to coincidence.

[0008]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, it explains, referring to a drawing. First, the configuration of T-SOFC which will be the requisite for the inspection approach of this invention is explained. Drawing 2 is drawing showing typical T-SOFC whole structure. Drawing 3 is the sectional view showing the structure of the cel of the fuel cell of drawing 2. (A) is the whole drawing of longitudinal section, and (B) is the cross-sectional view showing the B-B cross section of (A). The cylindrical cel aggregate 2 which is the central part of this solid oxide fuel cell 1 consists of cels 7 of long and slender a large number [being cylindrical (the example of a dimension, 15mm x die length of 500mm of diameters)]. The cylindrical cel 7 is an upper limit disconnection and lower limit close ceramic tube. The cross section of the cylindrical cel 7 is carrying out the shape of a multilayer cylinder (refer to drawing 3 (B)), and the laminating of each class of an air pole 61, the solid electrolyte layer 63, a fuel electrode 65, and interconnector 67 is carried out.

[0009] Each class of a cylindrical cel is formed with the ingredient which uses as a principal component the oxide which has respectively required functions (conductivity, permeability, a solid electrolyte, electrochemistry catalyst nature, etc.). In the cylindrical cel 7, the long and slender air installation tubing 4 for letting air pass passes. The air installation tubing 4 came out from the air distributor 31 of the fuel cell 1 upper part downward, and has reached even near the bottom of cylindrical cel 7 tube. With this air installation tubing 4, the air in the air distributor 31 is supplied in cylindrical cel 7 tube. The air supplied in the tube (bottom) comes out of the inside of a tube to the exhaust air combustion chamber 37 from the cel upper limit 21 toward the upper part, contributing to an above-mentioned generation-of-electrical-energy reaction. In this exhaust air combustion chamber 37, the fuel gas exhaust air and air exhaust air which are mentioned later are mixed, and the oxygen and the fuel component which were exhausted in the cylindrical cel 7 while it had been unreacted burn (general combustion).

[0010] Fuel gas is supplied to the external surface of the cylindrical cel 7 towards the upper part from the fuel header 9 of the fuel cell 1 lower part, and an above-mentioned generation of electrical energy is presented. The unreacted part of fuel gas and the electrochemical products of combustion (CO₂, H₂O, etc.) in the cel section go into the exhaust air combustion chamber 37 through the skimmer of cylindrical cel 7 upper-limit external surface. In this exhaust air combustion chamber 37, an unreacted fuel burns as mentioned above. A combustion gas is discharged from an exhaust port 35. The sensible heat of this exhaust gas is used for the remaining heat of the air supplied to a fuel cell, and fuel gas, or is sent to the generation-of-electrical-energy system using the usual steam boiler turbine, and is used for a generation of electrical energy.

[0011] The cylindrical cel 7 of six trains shown in drawing 2 is connected electrically mutually. That is, since the interconnector 67 of a right-hand side cylindrical cel is connected to the external surface (an outside electrode, fuel electrode in this case) of the cylindrical cel of that left-hand side through the nickel felt 8, six cylindrical cels of drawing 2 will be connected to the serial after all. If it is in the usual solid oxide fuel cell, since the generation-of-electrical-energy electrical potential difference in one cylindrical cel is about 1 volt, many cylindrical cels are connected to a serial and a necessary electrical potential difference is obtained. Collecting electrode plates 5a and 5b are formed in the outside of the outermost train of the cylindrical cel aggregate 2 in contact with the cylindrical cel 7 (minding the nickel felt 8). The power generated with the cel aggregate 2 is taken out from the current collection rod 41 connected with this collecting electrode plate 5 at it to the exterior.

[0012] Drawing 1 is drawing for explaining the inspection approach of the fuel cell concerning one example of this invention. This checking cel aggregate 2' is the same configuration as fundamentally as the cel

aggregate of the fuel cell of drawing 2 , and is stored into the same casing (not shown). And inspection operation is performed on the same temperature and gas conditions as the usual operational status.

[0013] In the inspection condition, checking electric-wire 10 b-e is attached to the current collection rods 41a and 41b by the side of plus minus, and the interconnector 8 of each cel 7. And electric-wire 10 b-e is led even to the voltmeter 12. The open circuit potential of each cel 7 is detectable as a difference of the interconnector of the cel before [one] this cel or the potential of a current collection rod, and the potential of own interconnector.

[0014] The open circuit potential of each cel is detected for the test equipment of drawing 1 under the following actual cel specifications and a service condition.

Air pole quality of the material : LaSrMnO₃ Interconnector quality of the material: LaCaCrO₃ Electrolyte quality of the material : Y₂ O₃ Stabilization ZrO₂ (YSZ)

Fuel electrode quality of the material : nickel+YSZ [0015]

Gas-supply temperature: 1000 degrees C Oxidizer : It is - cel by air and amount-of-supply/of 10l. Fuel : It is - cel by humidification hydrogen and amount-of-supply/of 0.6l. [0016] In this inspection operation, the open circuit potential of a normal cel is 0.97-0.98V. The following [open-circuit-potential 0.9V] judged with the thing with a leak clear to a solid electrolyte layer.

[0017]

[Effect of the Invention] According to this invention, in case connection immobilization of the cylindrical cel is carried out at a serial and juxtaposition, the open-circuit-potential fall by the detailed pinhole can also be certainly discovered by carrying out the monitor of the cel potential. Moreover, if the open circuit potential of each cel is detected, since which cel is immediately known in a problem, it will be easy to take a measure, without connecting each cel to juxtaposition, also when operating two or more cels to coincidence. Therefore, the inspection approach that T-SOFC excellent in dependability can be manufactured can be offered.

[Translation done.]

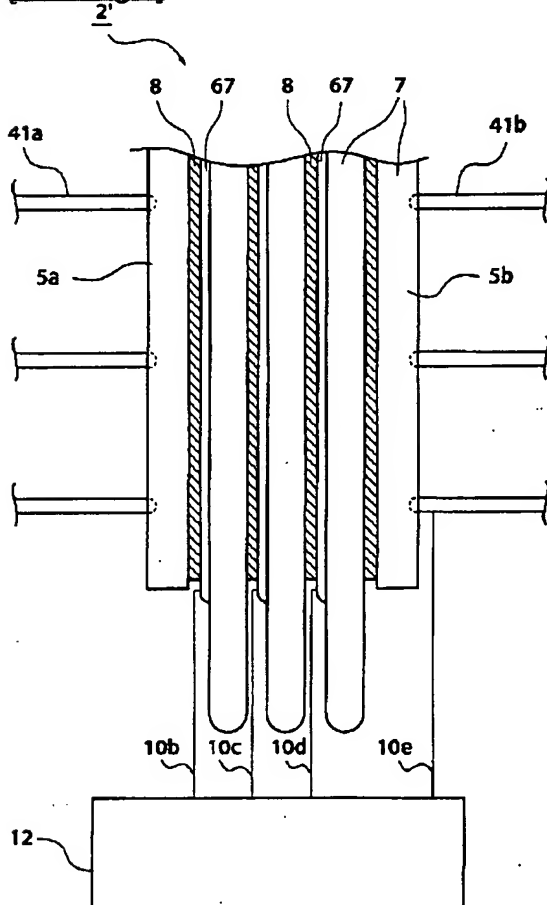
* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

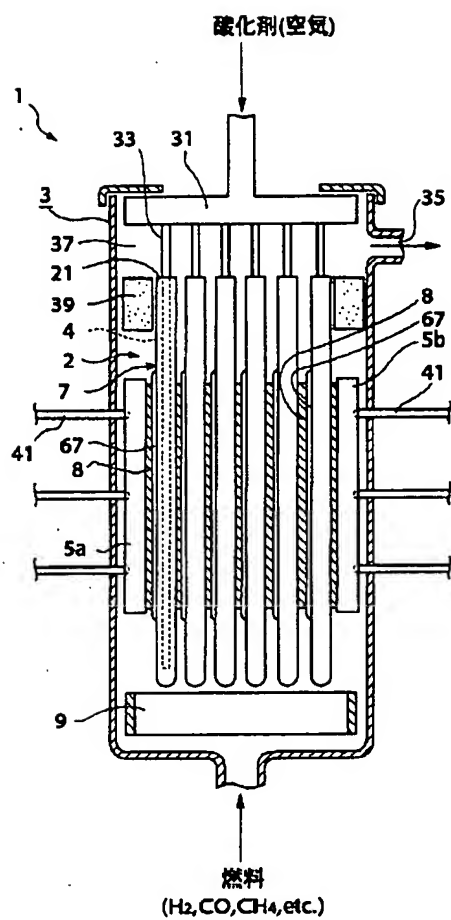
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DRAWINGS

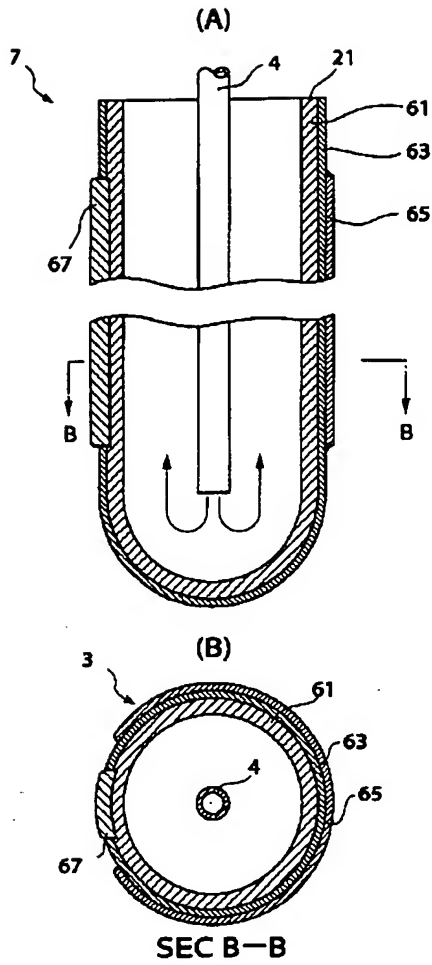
[Drawing 1]



[Drawing 2]



[Drawing 3]



[Translation done.]

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-058095

(43)Date of publication of application : 25.02.2000

(51)Int.Cl.

H01M 8/04

H01M 8/12

(21)Application number : 10-234895

(71)Applicant : KYUSHU ELECTRIC POWER CO INC
TOTO LTD

(22)Date of filing : 07.08.1998

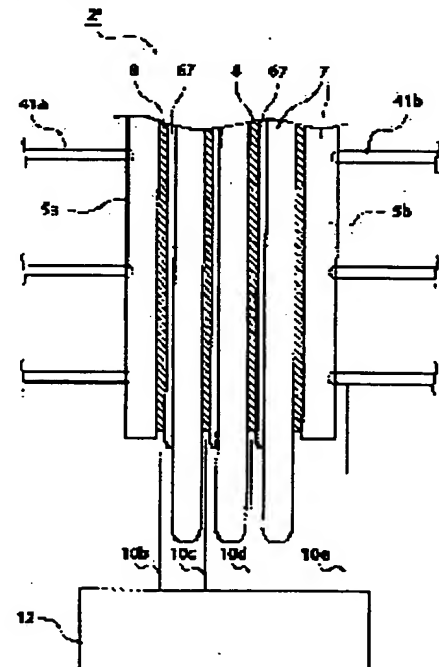
(72)Inventor : NAKAYAMA TAKAHARU
TAJIRI HIROAKI
KUROISHI MASAHIRO
TAKEUCHI HIROAKI
AIZAWA MASANOBU

(54) INSPECTION METHOD FOR SOLID-ELECTROLYTE FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an inspection method for a tubular cell type solid oxide fuel cell (T-SOFC), capable of detecting pin holes in cylindrical cells and superior in reliability.

SOLUTION: In inspection, electric wires 10b to 10e for inspection are attached to positive-negative sides and negative-side current collecting rods 41a, 41b and to interconnectors 8 of respective cells 7. The electric wires 10b to 10e are led to a voltmeter 12. Open-circuit potential of each cell 7 can be detected as the the potential difference between the potential of the interconnector or the current collecting rod and cell the potential of one cell before cell and the potential of its own interconnector.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-58095

(P2000-58095A)

(43) 公開日 平成12年2月25日 (2000.2.25)

(51) Int. Cl.

識別記号

F I

テーマコード(参考)

H 0 1 M 8/04
8/12

H 0 1 M 8/04
8/12

Z 5 H 0 2 6
5 H 0 2 7

審査請求 未請求 請求項の数 2 F D (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平10-234895

(22) 出願日 平成10年8月7日 (1998.8.7)

(71) 出願人 000164438

九州電力株式会社

福岡県福岡市中央区渡辺通2丁目1番82号

(71) 出願人 000010087

東興機器株式会社

福岡県北九州市小倉北区中島2丁目1番1号

(72) 発明者 中山 貴晴

福岡市南区塩原2丁目1番47号 九州電力株式会社総合研究所内

(74) 代理人 100100413

弁理士 渡部 温

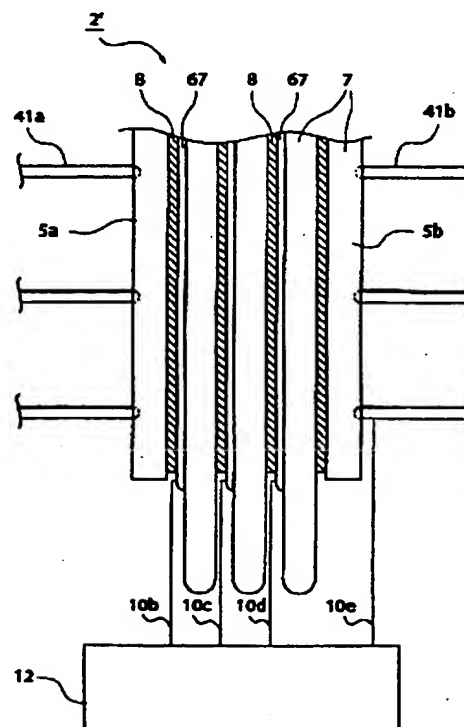
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 固体電解質型燃料電池の検査方法

(57) 【要約】

【課題】 円筒型セルのピンホールを検出することができ、信頼性に優れた円筒セル型固体電解質型燃料電池 (T-SOFC) の検査方法を提供する。

【解決手段】 検査状態において、プラス・マイナス側の集電棒 41a、41b 及び各セル 7 のインターコネクタ 8 に、検査用の電線 10b~e が付けられる。電線 10b~e は、電圧計 12 にまで導かれている。各セル 7 の開回路電位は、該セルの 1 つ手前のセルのインターコネクタ又は集電棒の電位と、自身のインターコネクタの電位の差として検出できる。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 多層円筒状に積層された空気極、固体電解質層、燃料極、及び、インターコネクタを有する複数の円筒型セルの集合体を備えた燃料電池の検査方法であって；セルを単独又は複数個接続して運転し、その際の各セルの開回路電位を測定して該セルの気密性を検査することを特徴とする固体電解質型燃料電池の検査方法。

【請求項 2】 上記検査運転を、燃料極側を水素を添加した窒素雰囲気とし、空気極側を酸素を含む雰囲気として行うことを特徴とする請求項 1 記載の固体電解質型燃料電池の検査方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、円筒型セルタイプの固体電解質型燃料電池（以下 T-SOFC ともいう）の検査方法に関する。特に、円筒型セルを直列及び並列に接続固定する際に、セル電位をモニタすることにより円筒型セルのピンホールを検出することができ、信頼性に優れた T-SOFC を提供できる検査方法に関する。

【0002】

【従来の技術】T-SOFC は、特公平 1-59705 号等の開示されている固体電解質型燃料電池の一種である。T-SOFC は、多孔質支持管—空気極—固体電解質層—燃料極—インターコネクタで構成される円筒型セルを有する。空気極側に酸素（空気）を流し、燃料極側にガス燃料（ H_2 、CO 等）を流してやると、このセル内で O^{2-} イオンが移動して化学的燃焼が起こり、空気極と燃料極の間に電位が生じ発電が行われる。なお、空気極が支持管を兼用する形式のものもある。

【0003】ところで、固体電解質層にピンホールが存在すると、セル内を O^{2-} イオンではなく O_2 分子が移動し、通常の燃焼を生じ、燃料側の酸素分圧を上昇させ、空気極と燃料極の間に生じる電位（開回路電位）を低下させる。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】上記ピンホールを検査する従来の方法は、セルを水中に入れてセル内に空気圧をかけて気泡を見つけるという古典的なものであった。この方法では、相当大きな（例えば径 0.5 μm ）ピンホールは見つけることができるが、小さいピンホールは見つけることができなかった。そのため、実際の装置に多数のセルを組み込んだ後に試運転し始めてから異常が認識されることがあった。この場合、多数のセルの中のどのセルが不良なものか不明なため処置しにくかった。

【0005】本発明は、このような問題点に鑑みてなされたもので、円筒型セルタイプの固体電解質型燃料電池（T-SOFC）の検査方法であって、円筒型セルを直列及び並列に接続固定する際に、セル電位をモニタすることにより円筒型セルのピンホールを検出することがで

き、信頼性に優れたT-SOFCを製造することのできる検査方法を提供することを目的とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するため、本発明の燃料電池の検査方法は、多層円筒状に積層された空気極、固体電解質層、燃料極、及び、インターコネクタを有する複数の円筒型セルの集合体を備えた燃料電池の検査方法であって；セルを単独又は複数個接続して運転し、その際の各セルの開回路電位を測定して該セルの気密性を検査することを特徴とする。

【0007】この方法によれば、微細なピンホールによる開回路電位低下も確実に発見できる。また、複数のセルを同時に運転する場合も、各セルを並列には接続しないで、各セルの開回路電位を検出するようにしておけば、どのセルが問題かすぐに分かるので処置しやすい。

【0008】

【発明の実施の形態】以下、図面を参照しつつ説明する。まず、本発明の検査方法の前提となるT-SOFCの構成について説明する。図2は、代表的なT-SOFCの全体構造を示す図である。図3は、図2の燃料電池のセルの構造を示す断面図である。(A)は全体の縦断面図であり、(B)は(A)のB-B断面を示す横断面図である。この固体電解質型燃料電池1の中核部分である円筒型セル集合体2は、細長い円筒状(寸法例、径15mm×長さ500mm)の多数のセル7から構成されている。円筒型セル7は、上端開放、下端閉のセラミックチューブである。円筒型セル7の断面は多層円筒状をしており(図3(B)参照)、空気極61、固体電解質層63、燃料極65及びインターコネクタ67の各層が積層されている。

【0009】円筒型セルの各層は、それぞれ必要な機能(導電性、通気性、固体電解質、電気化学触媒性等)を有する酸化物を主成分とする材料で形成されている。円筒型セル7内には、空気を通すための細長い空気導入管4が通っている。空気導入管4は、燃料電池1上部の空気分配器31から下に出て、円筒型セル7チューブの底近くにまで達している。この空気導入管4によって、空気分配器31内の空気が、円筒型セル7チューブ内に供給される。チューブ内(底)に供給された空気は、上述の発電反応に寄与しつつチューブ内を上方に向い、セル上端21から排気燃焼室37に出る。この排気燃焼室37においては、後述する燃料ガス排気と空気排気とが混合され、円筒型セル7で未反応のまま排気された酸素と燃料成分が燃焼(一般的な燃焼)する。

【0010】円筒型セル7の外面には、燃料電池1下部の燃料ヘッダー9から上方に向けて燃料ガスが供給され、上述の発電に供される。燃料ガスの未反応部分と、セル部での電気化学的燃焼生成物(CO_2 、 H_2O 等)とは、円筒型セル7上端外面のスキマを通して排気燃焼室37に入る。この排気燃焼室37では、上述のように未反応燃料が燃焼する。燃焼排ガスは、排気口35から排出される。この排ガスの顕熱は、燃料電池に供給される空気及び燃料ガスの余熱に用いられったり、あるいは、通常の蒸気ボイラー・タービンを用いる発電システムに

送られて発電に利用される。

【0011】図2に示されている6列の円筒型セル7は、互いに電氣的に接続されている。すなわち、右側の円筒型セルのインターコネクタ67が、その左側の円筒型セルの外周（外面電極、この場合燃料極）に、Niフェルト8を介して接続されているので、結局、図2の6本の円筒型セルは、直列に接続されていることとなる。通常の固体電解質型燃料電池にあつては、円筒型セル1本における発電電圧は約1ボルトなので、多数の円筒型セルを直列に接続して所要の電圧を得る。円筒型セル集合体2の最外列の外側には、集電板5a、5bが、円筒型セル7に接して（Niフェルト8を介して）設けられている。この集電板5と、それに接続されている集電棒41から、セル集合体2で発電された電力を外部へ取り出す。

【0012】図1は、本発明の1実施例に係る燃料電池の検査方法を説明するための図である。この検査用セル集合体2'は、図2の燃料電池のセル集合体と基本的には同様の構成であり、同様のケーシング（図示されず）中に収められている。そして、通常の運転状態と同様の温度・ガス条件で検査運転を行う。

【0013】検査状態においては、プラス・マイナス側の集電棒41a、41b及び各セル7のインターコネクタ8には、検査用の電線10b～eが付けられている。そして電線10b～eは、電圧計12にまで導かれている。各セル7の開回路電位は、該セルの1つ手前のセルのインターコネクタ又は集電棒の電位と、自身のインターコネクタの電位の差として検出できる。

【0014】図1の検査装置を以下の実際のセル仕様、運転条件下において各セルの開回路電位を検出する。

空気極材質 : LaSrMnO_3
 インターコネクタ材質 : LaCaCrO_3
 電解質材質 : Y_2O_3 安定化 ZrO_2 (YSZ)
 燃料極材質 : $\text{Ni} + \text{YSZ}$

【0015】

ガス供給温度 : 1000℃

酸化剤 : 空気、供給量10リットル/分・セル

燃料 : 加湿水素、供給量0.6リットル/分・セル

【0016】この検査運転において正常なセルの開回路電位は0.97～0.98Vである。開回路電位0.9V以下のものは固体電解質層に明らかな洩れがあるものと判定した。

【0017】

【図面の簡単な説明】

【発明の効果】本発明によれば、円筒型セルを直列及び並列に接続固定する際に、セル電位をモニタすることにより微細なピンホールによる開回路電位低下も確実に発見できる。また、複数のセルを同時に運転する場合も、各セルを並列には接続しないで、各セルの開回路電位を検出するようにしておけば、どのセルが問題かすぐに分かるので処置しやすい。そのため、信頼性に優れたT-SOFCを製造することのできる検査方法を提供できる。

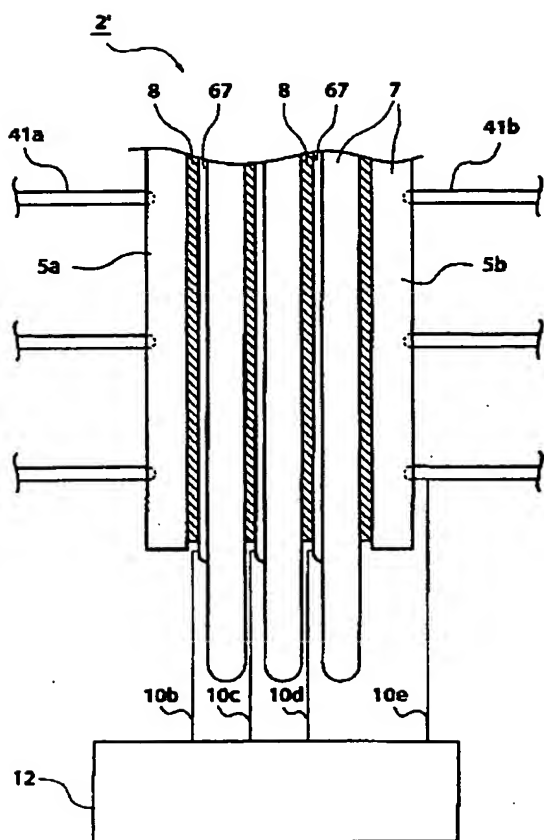
【図2】代表的なT-SOFCの全体構造を示す図である。

【図3】図2のT-SOFCのセルの構造を示す断面図である。(A)は全体の縦断面図であり、(B)は(A)のB-B断面を示す横断面図である。

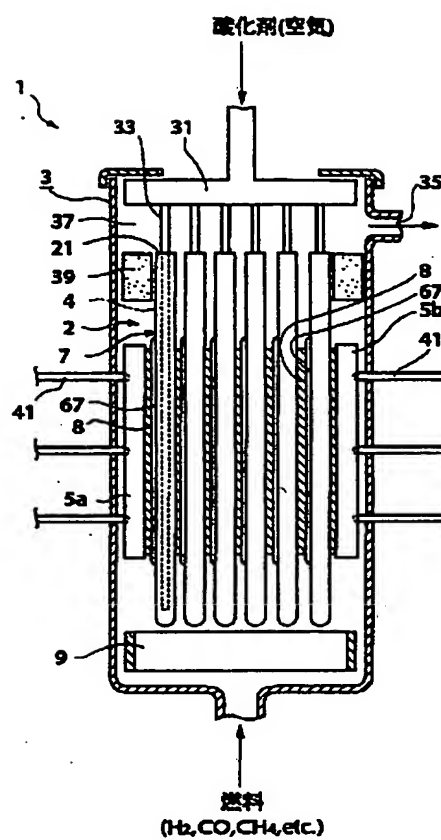
【符号の説明】

1 固体電解質型燃料電池	2 セル集合体
4 空気導入口	5 集電板
7 円筒型セル	8 Niフェルト
9 燃料ヘッダー	10 電線
12 電圧計	21 セル上端
31 空気分配器	35 排気口
37 排気燃焼室	41 集電棒
61 空気極	63 固体電解質層
65 燃料極	67 インターコネクタ

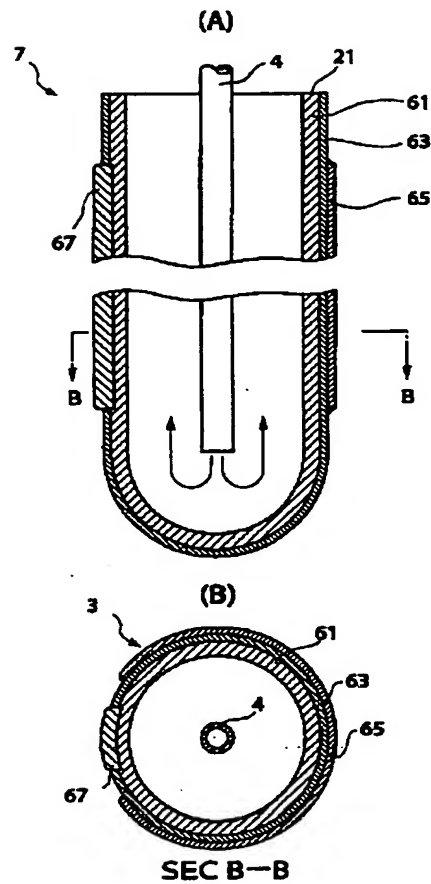
【図 1】



【図 2】



【図 3】



フロントページの続き

(72) 発明者 田尻 浩昭
福岡市南区塩原 2 丁目 1 番 47 号 九州電力
株式会社総合研究所内

(72) 発明者 黒石 正宏
福岡県北九州市小倉北区中島 2 丁目 1 番 1
号 東陶機器株式会社内

(72) 発明者 竹内 弘明
福岡県北九州市小倉北区中島 2 丁目 1 番 1
号 東陶機器株式会社内

(72) 発明者 相沢 正信
福岡県北九州市小倉北区中島 2 丁目 1 番 1
号 東陶機器株式会社内

F ターム (参考) 5H026 AA06 BB00 CC06 CV02 CV06
CX06
5H027 AA06 KK51 KK54